

This Page Is Inserted by IFW Operations
and is not a part of the Official Record

BEST AVAILABLE IMAGES

Defective images within this document are accurate representations of the original documents submitted by the applicant.

Defects in the images may include (but are not limited to):

- BLACK BORDERS
- TEXT CUT OFF AT TOP, BOTTOM OR SIDES
- FADED TEXT
- ILLEGIBLE TEXT
- SKEWED/SLANTED IMAGES
- COLORED PHOTOS
- BLACK OR VERY BLACK AND WHITE DARK PHOTOS
- GRAY SCALE DOCUMENTS

IMAGES ARE BEST AVAILABLE COPY.

**As rescanning documents *will not* correct images,
please do not report the images to the
Image Problem Mailbox.**

IN THE UNITED STATES PATENT AND TRADEMARK OFFICE



In re the application of:

DE TOFFOL

Attention: Applications Branch

Serial Number: New Application

Filed: January 19, 2000

For: Light Diffusing Compositions

CLAIM TO PRIORITY UNDER 35 U.S.C. §119

Assistant Commissioner for Patents
Washington, D.C. 20231

January 19, 2000

Sir:

The benefit of the filing date of the following prior foreign application is hereby requested for the above-identified application, and the priority provided in 35 U.S.C. §119 is hereby claimed:

MI99 A 000121

ITALY

Filed: January 22, 1999

In support of this claim, the requisite certified copy of said original foreign application is filed herewith along with a verified English-language translation.

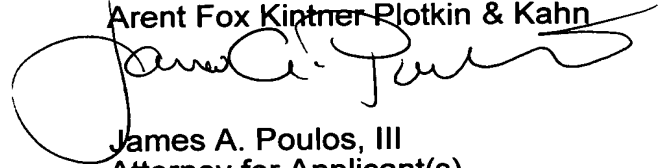
It is requested that the file of this application be marked to indicate that the applicants have complied with the requirements of 35 U.S.C. §119 and that the Patent and Trademark Office kindly acknowledge receipt of this documents.

In the event any fees are required, please charge our Deposit Account No.

01-2300.

Respectfully submitted,

Arent Fox Kintner Plotkin & Kahn

A handwritten signature in black ink, appearing to read "James A. Poulos, III". The signature is fluid and cursive, with a large initial "J" and "P".

James A. Poulos, III
Attorney for Applicant(s)
Registration No. 31,714

Atty. Docket No. 8907-9021

1050 Connecticut Avenue, Suite 600
Washington, D.C. 20005-5701
(202) 638-5000

Enclosure: -- Priority Document



MINISTERO DELL'INDUSTRIA, DEL COMMERCIO E DELL'ARTIGIANATO

DIREZIONE GENERALE DELLA PRODUZIONE INDUSTRIALE

UFFICIO ITALIANO BREVETTI E MARCHI



JCS11 U.S. PTO
09/487287



INV. IND.

Autenticazione di copia di documenti relativi alla domanda di brevetto per

N. MI99 A 000121

*Si dichiara che l'unita copia è conforme ai documenti originali
depositati con la domanda di brevetto sopraspecificata, i cui dati
risultano dall'accluso processo verbale di deposito*

Roma, li

28 DIC. 1999

IL DIRETTORE DELLA DIVISIONE

IL PRIMO DIRIGENTE

(Ing. Attilio Fondacchi)

I, ROSARIA CALDERARO
domiciled c/o SAMA PATENTS - Via G.B. Morgagni 2 - MILANO,
Italy, do hereby solemnly and sincerely declare:

1. THAT, I am thoroughly familiar with both the English and Italian languages, and
2. THAT the attached translation is a true translation into the English language of the certified copy of documents filed in the Italian Patent Office on **January 22, 1999** (No. MI99 A 000121)

in the name of **ELF ATOCHEM S.A.**

I further declare that all statements made herein of my knowledge are true, and that all statements made on information and belief are believed to be true and further that these statements were made with the knowledge that willful false statements and the like so made are punishable by fine or imprisonment or both under Section 1001 of Title 18 of the United States Code and that such willful false statements may jeopardize the validity of the U.S. patent application or any patent issued therefrom.

Calderaro

MINISTRY OF INDUSTRY, COMMERCE AND HANDICRAFT
GENERAL DIRECTION OF INDUSTRIAL PRODUCTION
CENTRAL PATENT OFFICE

Authentication of a copy of documents referring to the
application for a patent of the industrial invention
No. MI99-A.000121...

It is hereby declared that the attached
document is the true copy of the
original document filed together with
the above mentioned application for a
patent, the data of which result from
the enclosed filing minutes.

Rome, DEC. 28, 1999

Signed for the Director
of the Department
THE FIRST MANAGER
(Eng. Attilio Roncacci)

S E A L

TO THE MINISTRY OF INDUSTRY, COMMERCE AND HANDICRAFT
CENTRAL PATENT OFFICE - ROME
APPLICATION FOR INDUSTRIAL PATENT

AM 9995/001

A. APPLICANT (I)

applicant's code ☐ residence code ☐
1) Surname, name/company, type: ELF ATOCHEM S.A.
town, (prov./country) PUTEAUX (FR) identification code ☐
2) Surname, name/company, type: ☐
town, (prov./country) ☐ identification code ☐

B. REPRESENTATIVE:

representative's code ☐ prof. ref. no. ☐
Surname, name: SAMA DANIELE tax code no. 0000010441370151
Name of patent agency: SAMA PATENTS
Address Via G.B. Morgagni no. 2 town MILANO post code 20129 (prov.) MI

C. ELECTIVE DOMICILE:

name ☐
Address ☐ no. ☐ town ☐ post code ☐ (prov.) ☐

D. TITLE:

proposed class (sect./subcl.): ☐
"LIGHT DIFFUSING COMPOSITES"

E. DESIGNATED INVENTORS:

Surname, name Surname, name
1) DE TOFFOL ANDREA 3) ☐
2) STASI ALBERTO LUCA 4) ☐

F. PRIORITY:

priority code ☐
country type number date
1) ☐ ☐ ☐ ☐
2) ☐ ☐ ☐ ☐

G. AUTHORIZED CULTURE CENTRE FOR MICROBIOLOGICAL PROCESSES name:

H. SPECIAL NOTES:

DOCUMENTATION ATTACHED:

| | | |
|---|------------------------------|--|
| 1) <input type="checkbox"/> <u>2</u> RES/YES | no. <u>25</u> | description with abstract and claims |
| 2) <input type="checkbox"/> RES/YES | no. <input type="checkbox"/> | drawing figures |
| 3) <input type="checkbox"/> XXXXXXX | | power of attorney |
| 4) <input type="checkbox"/> <u>1</u> RES/YES/NO | | designation of inventor |
| 5) <input type="checkbox"/> RES/YES/NO | no. <input type="checkbox"/> | documents of ownership with Italian translations |
| 6) <input type="checkbox"/> RES/YES/NO | | authorisation |
| 7) <input type="checkbox"/> RES/YES/NO | | complete name of applicant |
| 8) receipt for payment of Lire <u>565.000=</u> | | date <input type="checkbox"/> |

Certified copy of this document required? YES/NO ☒ YES

COMPILED ON 22/01/1999 THE APPLICANT (S) ☐ p. ELF ATOCHEM S.A.
CONTINUATION YES/NO ☐ NO SAMA PATENTS (DANIELE SAMA)

PROVINCIAL DEPT. IND. COMM. HANDICRAFT OF MILANO code 15
STATEMENT OF FILING: APPLICATION NO. MI99A 000121 Reg. A
Nineteen hundred and 99 day 22 of the month of JANUARY
The abovementioned applicant(s) has(have) presented to me, the undersigned, this application consisting of 100 additional pages for the granting of the above mentioned patent.

I. NOTES OF THE DELEGATE

THE DELEGATE

Official
stamp

THE REGISTRAR
CORTONESI MAURIZIO

LIGHT DIFFUSING COMPOSITES

ABSTRACT

A thermoplastic material composite panel, comprising a transparent thermoplastic base layer, light conducting, having a thickness generally in the range 3-40 mm, and a light diffusing layer, having a thickness generally in the range 10-1500 micron, placed on one face of the base layer, said diffusing layer being characterized in that it contains barium sulphate in amount by weight, expressed as per cent ratio on the total weight of the diffusing layer, in the range 0.01-2%, the barium sulphate having average particle sizes in the range 0.1-50 micron, the composite sizes being greater than or equal to 10 cm.

Description of an industrial invention in the name of:

ELF ATOCHEM S.A., of French nationality, with head office in
4 & 8, Cours Michelet, La Défense 10, 92800 Puteaux (FR)

* * * * *

The present invention relates to a composite comprising at least a thermoplastic polymer layer, preferably based on acrylic polymers, and by one or two layers of a composition based on a thermoplastic material, preferably based on acrylic polymers, containing particles of a specific material light diffusing, said composite being usable for preparing luminous signs or displays also of remarkable sizes, having sides at least ≥ 10 cm, generally in the range 20 cm-2 m, preferably 20 cm-1 m, said signs being lit on one or more edges (edge lit), the sign area being greater than 100 cm^2 , preferably greater than 600 cm^2 .

More specifically the invention relates to sheets formed by a base sheet or base layer of methylmethacrylate copolymers with (meth)acrylic esters or (meth)acrylic acids, specifically methylmethacrylate/alkylacrylate copolymers, preferably ethyl acrylate, and by one or two distinct layers constituted by thermoplastic material, preferably the same of the described base sheet, containing particles of a specific material able to diffuse light, so to give luminous signs having a lighting as uniform as possible.

It is known in the art that conventional luminous signs

are generally constituted by a frame on which sheets or panels of plastic material which contains dispersed particles able to diffuse light, are assembled. Generally light source is not placed on the edges but behind the panel (back lit). The main feature required by the back lit signs is that the sheets are sufficiently opaque so as to hide the source of light placed behind the sheet. The source of light is generally constituted by neon lamps. On the external side of the sheet the produced lighting is observed. The drawback of this type of sign resides in the high manufacture costs and in the remarkable electric power amount required for lighting.

In order to overcome these inconveniences in the prior art signs lit with lamps positioned edge lit with respect to the sign have been made by using thermoplastic material sheets containing particles diffusing the light dispersed in the mass. The luminous rays are diffused in the sheet by the diffusing particles dispersed in the thermoplastic polymer. Generally, also when a rather uniform intensity of the light on the sign surface is obtained, this is not very high.

From a practical point of view, it is very difficult to obtain a distribution as uniform as possible of the light, diffused on the sign surface, combined with a high intensity. This is the technical problem to be solved: to find compositions allowing to increase the diffused light intensity

on the sign surface, and therefore to try to reduce the losses of luminous intensity diffused along the thermoplastic material. This problem becomes more difficult as the luminous sign size increases. Said problem does not arise when the panel sizes are very small, less than 10 cm, as for instance the miniaturized displays. In this case it is possible to obtain good results on the panel in terms of an intense and uniform diffused light. However, as said, this result does not give any suggestion for panels having sizes greater than those of the miniaturized displays, i.e. greater than or equal to 10 cm.

In GB patent 2,165,631 a small size (miniaturized) device light diffusing is described, substantially constituted by a first transparent base layer transmitting light, which is lit by a source of light positioned edge lit with respect to the layer, by a second layer diffusing light, containing a conventional diffusing light agent, and by a layer reflecting the light, which is on the external surface of the base layer. In the Examples it is mentioned that the composite panel has sides having sizes smaller than 6.5 cm, the miniaturized display area being 30 cm², and that the reflecting layer allows to obtain a diffused light on the display with sufficiently uniform luminous intensity and that titanium dioxide is used as light diffusing agent. In the patent it is also

stated that the best results in panel brightness terms are obtained when the second layer contains titanium dioxide amounts in the range 0.1-0.3% by weight. Tests carried out by the Applicant have shown that at said concentrations of titanium dioxide it is not possible to uniformly light composite panels having sides greater than 10 cm, i.e. having sizes greater than the miniaturized displays (see the Examples).

The need was felt to have available sheets or panels for luminous signs or displays, lit by one or more lamps placed at the sides with respect to the sign or display, able to give an intense and homogeneous lighting as much as possible.

It has now been surprisingly and unexpectedly found a thermoplastic material panel meeting the above mentioned requirements, by using a composite with a specific diffusing light material as described hereinafter.

An object of the present invention is a composite panel of thermoplastic material, comprising a transparent thermoplastic base layer transmitting light, having a thickness generally in the range 3-40 mm, preferably 6-25 mm and a diffusing light layer, having a thickness generally in the range 10-1500 micron, preferably 30-1000 micron, placed on one or both parts of the base layer, said diffusing layer being characterized in that it is constituted by thermoplastic material containing barium sulphate in amount by weight, expres-

sed as per cent ratio on the total weight of the diffusing layer, in the range 0.01-2%, preferably 0.1-0.8%, still more preferably 0.1-0.6%, the barium sulphate having average particle sizes in the range 0.1-50 micron, preferably 0.5-10 micron, the composite sides being at least ≥ 10 cm, generally in the range 20 cm-2 m, preferably 20 cm-1 m, said composite having on one or more edge lit, the composite area being greater than or equal to 100 cm², preferably greater than 600 cm².

The polymeric thermoplastic material of which the base layer and the diffusing layer containing barium sulphate are constituted, can be, for example, a (meth)acrylic (co)polymer, polycarbonate, polystyrene, ethylene polyterephthalate, copolyesters constituted by ethylene polyterephthalate modified with glycol such as for example diethylenglycol, butandiol, hexandiol and 1,4-cyclohexane dimethanol or mixtures of ethylene polyterephthalate and of these copolymers.

Specifically the (meth)acrylic thermoplastic (co)polymer can be constituted by an alkyl (meth)acrylate homopolymer or by a copolymer derived from an alkyl (meth)acrylate with at least one monomer having one or more ethylenic unsaturations copolymerizable with the alkyl (meth)acrylate.

As alkyl (meth)acrylate the compounds wherein the alkyl group has from 1 to 8 carbon atoms, for example methyl-, eth-

yl-, propyl-, isopropyl- and butyl- (meth)acrylate can be mentioned. The methyl methacrylate is a particularly preferred monomer.

Preferably the thermoplastic polymer is formed by methyl methacrylate homopolymers or methylmethacrylate copolymers with (meth)acrylic esters or (meth)acrylic acids, specifically methylmethacrylate/alkylacrylate copolymers, preferably ethyl acrylate.

The (meth)acrylic thermoplastic (co)polymer comprises from 70 to 100% by weight of alkyl methacrylate and from 0 to 30% by weight, preferably from 3 to 10% by weight, of one or more comonomers containing one or more ethylenic unsaturations, said comonomers copolymerizable with the alkyl methacrylate. These comonomers containing one or more ethylenic unsaturations are selected, for example, from C_1 - C_8 alkylacrylates, styrene, substituted styrene, acrylonitrile, methacrylonitrile, C_1 - C_8 alkyl methacrylates different from the alkyl methacrylate used as main comonomer, hydroxyalkyl acrylates and methacrylates, alkoxyalkyl or aryloxyalkyl acrylates and methacrylates wherein the alkylic group has from 1 to 4 carbon atoms, acrylamide, methacrylamide, acrylic acid, methacrylic acid, maleimides and C_1 - C_4 alkylen glycol dimethacrylates.

The invention acrylic copolymers can be obtained with anyone of the known processes, for example by suspension or

mass polymerization, according to well known prior art methods in the prior art. The polymerization takes place in the presence of a chain transfer agent, such as for example di-unsaturated monocyclic terpenes and mono-unsaturated bicyclic terpenes such as for example terpinolene; mercaptanes, such as t.-dodecyl mercaptane.

The sign composite panel according to the present invention can be produced by coextrusion, by casting, or by compression molding or by a film coupling in calendering or optionally by gluing, according to well known methods to the skilled in the art. Preferably the composite is prepared by coextrusion of the thermoplastic polymer base sheet and of the thermoplastic polymer diffusing layer containing the barium sulphate; or by compression molding of the diffusing layer of thermoplastic polymer containing the barium sulphate, obtained by extrusion, on a base sheet of the thermoplastic polymer, said sheet obtained by extrusion or by casting. Coextrusion is the preferred process to obtain panels constituted by the base layer and by the diffusing layer according to the present invention.

The composite panel edges are preferably polished according to known methods.

On one or more edges of the present invention composite panel, on which the source of light is not positioned, a

reflecting film, such as for example Scotch 3M[®] polyester tape 850 film, aluminum. etc., can be placed.

Optionally the thermoplastic polymer of the base sheet can contain particles of substances diffusing light, both of polymeric and inorganic type. The average sizes of the polymeric particles are in the range 0.1-200 micron, preferably 0.1-50 micron, more preferably 1-15 micron, the amount is in the range 5-1000 ppm, preferably 100-200 ppm. Preferably the polymeric particles are substantially spherical. The inorganic particles have the above sizes for the diffusing surface layer and are used in the amounts indicated for the organic polymeric particles.

When the coextrusion is used the polymer melting temperature of the organic polymeric particles diffusing light must be higher than the extrusion temperature, generally higher than 250°C.

Optionally on the free surface of the composite base sheet, not joined to the diffusing layer, parallel adhesive bands, having a width from some millimeters to some centimeters, for ex. from 0.5 to 20 mm, placed at a distance, the one from the other, generally within the indicated limits, can be present, said distance can even be greater than the strip width, see for example EP 242,308. In this way the luminous intensity is still increased.

The following examples illustrate the invention, and do not limit the application scope of the same.

EXAMPLE 1

DESCRIPTION OF THE LIGHTING SYSTEM :

Lighting system A (on one edge, with the lamp inside a metallic structure having a slit)

The lighting system consists of an Osram L 30W/20 neon lamp inserted inside a metallic structure closed except on one side, wherein an opening is present, centred with respect to the lamp, having sizes of about 8.5 mm of width and having the same lamp length. The composite panel lighting according to the invention is made at the side, by inserting for a depth of about 1 cm one edge of said panel inside the slit, so that the sheet edge is in practice in contact with the lamp. Under the panel, in contact with the same, an Altuglas 213 20493 opaque white sheet, 5 mm thickness produced by Atoglas, is placed.

Lighting system B (on one edge, with an aluminum sheet wound around the lamp and partially covering the panel)

The lighting system consists of a Philips Reflex TL 5 - 13 W lamp, on which a side edge of the composite panel is leant. An aluminum sheet is wound around the lamp to cover the two panel surfaces up to a distance of about 5 cm from the edge in contact with the lamp. The aluminum sheet has the pur-

pose to hinder the dispersion of the light emitted by the lamp.

In contact with the lower surface of the panel an opaque white Altuglas 213 20493 sheet, having a 5 mm thickness, produced by Atoglas, is placed.

Lighting system C (on two edges)

The system is constituted by two lighting systems, each identical to the system A, placed on two opposite edges of the panel. Furthermore, at about 3 cm below the panel an opaque white Altuglas 213 20493 sheet, having a 5 mm thickness, by Atoglas, is placed.

Diffused light intensity detectors

Detector 1 - luxmeter RS 180 - 7133 with option F (fluorescent) for source of light selection. The values reported in the following Tables are the average ones and they refer to an average detection time of each measurement of about 10 sec.

Detector 2 - luxmeter LAP N° 3091 F photoelectrical cell 67.

EXAMPLE 2

Panel (composite) formed by two layers, obtained by compression molding

The panel base layer consists of transparent PMMA having a thickness of about 8 mm and 270 x 270 mm sizes, obtained by an Altuglas' 200 10.000 sheet having a 8 mm nominal thic-

kness, produced by Atoglas.

The diffusing layer is constituted by PMMA and barium sulphate particles: a leaf having a $450 \pm 50 \mu\text{m}$ thickness is obtained by extruding with a conventional monoscrew extruder equipped with degassing, with standard thermal profile for PMMA, a blend constituted for 99.5% of Altuglas' BS 9EL beads, produced by Atoglas and for 0.5 % of Blanc Fixe' K3 powder produced by Sachtleben Chemie, containing 99% of BaSO₄ barium sulphate, having an average particle size of $8 \mu\text{m}$.

In order to obtain the double layer panel, the above described sheet and leaf are coupled by compression molding by using a 60 ton Potvel compression press; the coupling temperature is of about 150°C, with a maximum total plastification and compression cycle of about 30 minutes. The cooling cycle is of about 5-10 minutes. The sheet extraction temperature is of about 70°C. By using this preparation method in the obtained panel the thickness of the diffusing layer can result not perfectly uniform.

The panel has a Transmittance value of 89% and an Haze of 40%, measured by Hazemeter according to the ASTM D 1003 method.

EXAMPLE 2a

Luminous diffusion measurements carried out by using a source of light according to the system A of Example 1

Diffused light measurements are carried out in dark room with the detector 1, by moving the detector photoelectrical cell, kept into contact with the free surface of the upper layer containing barium sulphate, in determined positions, at different distances from the source of light. The opaque white sheet is put into contact with the lower panel layer. At the top of Table 1, columns the distances, measured with reference to the external surface of the metallic structure containing the lamp, at which the values of the diffused luminous intensity have been determined, are reported.

In the first column on the left the absolute value in Lux, determined at a 3 cm distance from the lamp external metallic structure (4 cm from the lamp surface) is then reported. In the other columns the diffused light intensity values are expressed as percentages with respect to the preceding absolute value.

Table 1

| 3 (cm) | 7 | 9 | 12.5 | 15 | 17 | 19 | 22 |
|--------------|------|------|------|------|------|------|------|
| 490 (Lux) | | | | | | | |
| 100 % | 86 % | 80 % | 68 % | 67 % | 63 % | 60 % | 53 % |

EXAMPLE 2b

Luminous diffusion measurements with two sources of light placed on two opposite sides of the panel according to the system C of Example 1

Diffused light measurements are carried out in dark room by using the detector 1, by moving the detector photoelectri-

cal cell, kept into contact with the free surface of the upper layer containing barium sulphate, in the same positions with respect to the source of light as indicated in the preceding Example 2a. The opaque white sheet is positioned at 3 cm from the lower panel layer. Table 2 reports, as the preceding Table 1:

- The absolute value of the diffused luminous intensity, expressed in Lux, measured at 3 cm with respect to the external surface of one of the two metallic structures containing the lamps, as indicated in Example 2a.
- The diffused luminous intensity value, measured at different distances, expressed as percentage with respect to the previous absolute value of diffused light intensity.

Table 2

| | | | | | | | |
|--------------|-------|---|-------|-------|----|-------|--------------|
| 3 (cm) | 7 | 9 | 12.5 | 15 | 17 | 19 | 22 |
| 500 (Lux) | | | | | | | 500 (Lux) |
| 100 % | 114 % | - | 115 % | 114 % | - | 113 % | 100 % |

EXAMPLE 2c

Example 2b has been repeated under the same above mentioned conditions, but by using the detector 2 of Example 1. The following Table 3 shows the obtained results. The trend of the per cent diffused luminous intensity is similar to that of Table 2.

Table 3

| 3 (cm) | 7 | 9 | 12.5 | 15 | 17 | 19 | 22 |
|--------------|-------|-------|-------|-------|-------|----|--------------|
| 420 (Lux) | | | | | | | 420 (Lux) |
| 100 % | 113 % | 113 % | 114 % | 115 % | 115 % | - | 100 % |

EXAMPLE 2d

The determinations have been carried out as in Example 2b, but using the panel in upturned position, so that the diffusing layer containing the barium sulphate was placed below, in the lowest position, with respect to the base layer and placing the detector cell into contact with the PMMA layer as such (base sheet): the results are reported in Table 4 and they show that the diffusing effect is similar.

Table 4

| 3 (cm) | 7 | 9 | 12.5 | 15 | 17 | 19 | 22 |
|--------------|-------|-------|-------|-------|-------|-------|--------------|
| 488 (Lux) | | | | | | | 490 (Lux) |
| 100 % | 111 % | 110 % | 110 % | 110 % | 111 % | 112 % | 100 % |

EXAMPLE 3Three layer panel obtained by compression molding

In the three layer panel the intermediate layer is the transparent base layer, formed of PMMA as such, having a thickness of about 8 mm, obtained by an Altuglas' 200 10.000 sheet, 8 mm of nominal thickness, produced by Atoglas, having 270 x 270 mm sizes.

The two external layers are constituted by PMMA and barium

sulphate: two leaves of $200 \pm 10 \mu\text{m}$ thickness are obtained by extruding with a conventional monoscrew extruder, equipped with degassing, with standard thermal profile for PMMA, a blend containing 99.4% of Altuglas' BS 9EL beads produced by Atoglas and 0.6% of Blanc Fixe' K3 powder produced by Sachtleben Chemie, containing 99% of barium sulphate with particle average size of $8 \mu\text{m}$.

The two leaves having a low thickness are coupled to the two surfaces of the 8 mm sheet by compression molding, using a 60 tons compression Potvel press: the coupling temperature is of about 155°C , with a plasticization and compression maximum total cycle of about 30 minutes. The cooling cycle is of about 5-10 minutes. The sheet extraction temperature is of about 70°C .

The obtained panel has a Transmittance value of 89% and a Haze of 40%, measured by Hazemeter according to the ASTM D 1003 standard.

EXAMPLE 3a

Measurements of luminous diffusion carried out by using a source of light according to the system A of Example 1.

Diffused light measurements are carried out in dark room according to the methods described in Ex. 2a, by using the detector 1. In Table 5 the absolute value of the diffused luminous intensity, expressed in Lux, measured at 3 cm from the

edge of the metallic structure in which the lamp is contained and the value of the diffused luminous intensity, measured at different distances with respect to the source of light as mentioned in Ex. 2a, expressed as percentage with respect to the previous absolute value of diffused light intensity, are reported.

Table 5

| 3 (cm) | 7 | 9 | 12.5 | 15 | 17 | 19 | 22 |
|--------------|------|------|------|------|------|------|------|
| 530 (Lux) | | | | | | | |
| 100 % | 84 % | 75 % | 63 % | 60 % | 58 % | 55 % | 50 % |

EXAMPLE 3b

Luminous diffusion measurements with two sources of light placed on two opposite panel sides according to the system C of Example 1

Diffused light measurements are carried out in dark room by using detector 1, by moving the detector photoelectrical cell, kept into contact with the free surface of the upper layer containing barium sulphate, at the same positions with respect to the source of light as mentioned in Ex. 2a. The opaque white sheet is placed at 3 cm from the lower layer of the panel. The results are reported in Table 6.

Table 6

| 3 (cm) | 7 | 9 | 12.5 | 15 | 17 | 19 | 22 |
|--------|---|---|------|----|----|----|----|
|--------|---|---|------|----|----|----|----|

| | | | | | | | |
|--------------|-------|-------|-------|-------|-------|-------|--------------|
| 520 (Lux) | | | | | | | 520 (Lux) |
| 100 % | 105 % | 103 % | 100 % | 102 % | 102 % | 102 % | 100 % |

EXAMPLE 4Two-layer coextruded panel

The lower panel layer (base layer) is constituted by transparent PMMA, having a thickness of about 3.7 mm, obtained by extruding Oroglass[®] V045 grains produced by Atoglas.

The diffusing layer, having a thickness of about 100 μm , constituted by PMMA and barium sulphate, is obtained by extruding PMMA Oroglass[®] V045 grains charged with master batch containing Blanc Fixe[®] K3 powder produced by Sachtleben Chemie, said powder being formed for 99% of barium sulphate having a particle average size of about 8 μm , such that the barium sulphate content in the diffusing layer is 0.6% by weight.

The coextruder with calender is constituted by two mono-screw extruders equipped with degassing: the materials are extruded by using a conventional thermal profile for PMMA. The obtained sheet has a 30 cm width.

The obtained panel has a Transmittance value of 91% and a Haze of 15% measured by Hazemeter according to the ASTM D 1003 method.

EXAMPLE 4aLuminous diffusion measurements determined using a source of

light according to the system B of Example 1

Diffused light measurements are carried out in dark room with the detector 1, by moving the detector photoelectrical cell kept into contact with the free surface of the upper layer containing barium sulphate, in determined positions, at different distances, calculated by referring to the lamp external surface, indicated in the following Table 7. The opaque white sheet is placed into contact with the lower panel layer. The results are reported in Table 7.

Table 7

| | | |
|-----------|------|------|
| 10 (cm) | 15 | 20 |
| 660 (Lux) | 77 % | 55 % |

EXAMPLE 5 (comparative)Panel containing in the diffusing layer titanium dioxide instead of barium sulphate

An identical two layer panel, with the same sizes and thickness of the base layer and diffusing layer, as the one described in Example 2, obtained by the same compression molding method, is used. The oxide contained in the diffusing layer, obtained by the same extrusion method of the leaf containing barium sulphate, is titanium dioxide (Kronos' 2210 by Kronos Titan having a titre of about 94%) in percentage by weight on the layer total weight of 0.3%.

The obtained two-layer panel has a Transmittance value of 33% and a Haze of 100%, measured by Hazemeter according to ASTM D 1003 method.

EXAMPLE 5a (comparative)

Luminous diffusion measurements determined by using a source of light according to the system A of Example 1

On the so prepared sheet diffused light measurements are carried out in dark room with the detector 1, by moving the detector photoelectrical cell, kept into contact with the free surface of the upper layer containing titanium dioxide, at the same positions with respect to the source of light as mentioned in Ex. 2a. The opaque white sheet is placed into contact with the lower panel layer. The results are reported in Table 8. At the top of the columns the distances, measured from the external surface of the metallic structure containing the lamp, at which the diffused luminous intensity values have been determined, are reported. In the first column on the left the absolute value in Lux is reported, determined at the distance of 3 cm (about 4 cm from the lamp surface). In the other columns the diffused light intensity values are expressed as percentage with respect to the preceding absolute value of diffused light intensity.

Table 8

| 3 (cm) | 7 | 9 | 12.5 | 15 | 17 | 19 | 22 |
|--------------|---|---|------|----|----|----|----|
| 920 (Lux) | | | | | | | |

| | | | | | | | |
|-------|------|------|------|------|------|------|------|
| 100 % | 52 % | 39 % | 25 % | 18 % | 14 % | 12 % | 10 % |
|-------|------|------|------|------|------|------|------|

EXAMPLE 5b (comparative)

Luminous diffusion measurements with two sources of light placed on two opposite panel sides according to system C of Example 1

On the panel prepared in the preceding Example 5 diffused light measurements are carried out in dark room by using the detector 1, by moving the detector photoelectrical cell, kept into contact with the free surface of the upper layer containing titanium dioxide, in the same positions mentioned in the preceding Ex. 2a. The opaque white sheet is placed at 3 cm from the lower layer of the panel. The results are reported in Table 9.

Table 9

| | | | | | | | |
|--------------|------|------|------|------|------|------|--------------|
| 3 (cm) | 7 | 9 | 12.5 | 15 | 17 | 19 | 22 |
| 920 (Lux) | | | | | | | 920 (Lux) |
| 100 % | 79 % | 73 % | 62 % | 69 % | 75 % | 82 % | 100 % |

CLAIMS

1. A composite panel of thermoplastic material, comprising a base transparent thermoplastic layer, conducting the light, having a thickness generally in the range 3-40 mm, preferably 6-25 mm and a diffusing light layer, having a thickness generally in the range 10-1500 micron, preferably 30-1000 micron, placed on one or both surfaces of the base layer, said diffusing layer being characterized in that it is constituted by thermoplastic material containing barium sulphate in amount by weight, expressed as per cent ratio on the total weight of the diffusing layer, in the range 0.01-2%, preferably 0.1-0.8%, still more preferably 0.1-0.6%, the barium sulphate having average particle sizes in the range 0.1-50 micron, preferably 0.5-10 micron, the composite sides being at least ≥ 10 cm, preferably in the range 20 cm-1 m, said composite having one or more edge lit, the composite area being greater than 100 cm², preferably greater than 600 cm².
2. A panel according to claim 1, wherein the composite panel contains only one diffusing layer.
3. A panel according to claims 1-2, wherein the source of light is placed on two opposite edges.
4. A panel according to claims 1-3, wherein the thermopla-

stic material of which the base layer and the diffusing layer containing barium sulphate are constituted, is selected from a (meth)acrylic (co)polymer, polycarbonate, polystyrene, ethylene polyterephthalate, copolyesters constituted by ethylene polyterephthalate modified with a glycol such as for example diethylenglycol, butanediol, hexandiol and 1,4-cyclohexane dimethanol or mixtures of ethylene polyterephthalate with these copolymers.

5. A panel according to claim 4 wherein the thermoplastic (meth)acrylic (co)polymer is constituted by an alkyl (meth)acrylate homopolymer or by a copolymer derived from an alkyl (meth)acrylate with at least one monomer having one or more ethylenic unsaturations copolymerizable with the alkyl (meth)acrylate.
6. A panel according to claim 5 wherein the alkyl (meth)acrylate is selected from the compounds wherein the alkyl group has from 1 to 8 carbon atoms, such as, methyl, ethyl, propyl, isopropyl and butyl (meth)acrylate.
7. A panel according to claims 4-6, wherein the thermoplastic polymer is constituted by methyl methacrylate homopolymers or methylmethacrylate copolymers with (meth)acrylic esters or (meth)acrylic acids.

8. A panel according to claim 7 wherein the thermoplastic polymer is constituted by methylmethacrylate/alkyl acrylate copolymers, preferably ethyl acrylate.
9. A panel according to claim 5 wherein the (meth)acrylic thermoplastic (co)polymer comprises from 70 to 100% by weight of alkyl methacrylate and from 0 to 30% by weight, preferably from 3 to 10% by weight, of one or more comonomers containing one or more ethylenic unsaturations, said comonomers being copolymerizable with the alkyl methacrylate.
10. A panel according to claims 1-9, wherein the composite panel is obtained by coextrusion, by casting, or by compression molding or by coupling of a film in calendaring, or optionally by gluing.
11. A panel according to claim 10, wherein the composite is prepared by coextrusion of the base sheet of thermoplastic polymer and of the diffusing layer of thermoplastic polymer containing the barium sulphate, or by compression molding of the thermoplastic polymer layer containing barium sulphate, obtained by extrusion, on a base sheet of thermoplastic polymer, said sheet obtained by extrusion or casting.
12. A panel according to claims 1-11, wherein on one or more edges of the composite panel, on which the source of

light is not positioned, a reflecting film is placed.

13. A panel according to claims 1-12, wherein the thermoplastic polymer of the base sheet can contain particles of substances diffusing light, both of polymeric and inorganic type.

14. A panel according to claim 13 wherein the polymeric particle average sizes are in the range 0.1-200 micron, preferably 0.1-50 micron, more preferably 1-15 micron, the amount is in the range 5-1000 ppm, preferably 100-200 ppm.

15. A panel according to claims 1-14 wherein on the free surface of the composite base sheet parallel adhesive bands are present, having a width of some millimeters to some centimeters, preferably from 0.5 to 20 mm, placed at a distance the one from the other generally within the indicated limits, said distance being also greater than the band width.

16. Luminous signs comprising the composite panel of claims 1-15.

A. RICHIEDENTE (I)

1) Denominazione **ELF ATOCHEM S.A.**
Residenza **PUTEUX (FR)** codice _____
2) Denominazione _____
Residenza _____ codice _____

B. RAPPRESENTANTE DEL RICHIEDENTE PRESSO L'U.I.B.M.

cognome e nome **SAMA DANIELE** cod. fiscale **0000010441370151**
denominazione studio di appartenenza **SAMA PATENTS**
via **G.B. MORGAGNI** n. **2** città **MILANO** cap **20129** (prov) **MI**

C. DOMICILIO ELETTIVO destinatario

via _____ n. _____ città _____ cap _____ (prov) _____

D. TITOLO

classe proposta (sez/cl/sci) _____

gruppo/sottogruppo _____

"COMPOSITI DIFFONDENTI LA LUCE"

ANTICIPATA ACCESSIBILITÀ AL PUBBLICO: SI ☐ NO ☒

SE ISTANZA: DATA _____

N° PROTOCOLLO _____

E. INVENTORI DESIGNATI

cognome nome

cognome nome

1) **DE TOFFOL ANDREA** 3) _____
2) **STASI ALBERTO LUCA** 4) _____

F. PRIORITÀ

nazione o organizzazione

tipo di priorità

numero di domanda

data di deposito

allegato
S/R

SCIOGLIMENTO RISERVE

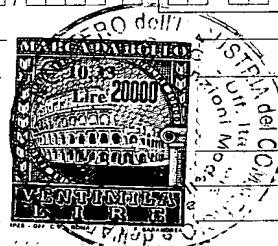
Data

N° Protocollo

1) _____
2) _____

G. CENTRO ABILITATO DI RACCOLTA CULTURE DI MICRORGANISMI, denominazione

H. ANNOTAZIONI SPECIALI



DOCUMENTAZIONE ALLEGATA

N. es.

Doc. 1) **2** **PROV** n. pag. **25** riassunto con disegno principale, descrizione e rivendicazioni (obbligatorio 1 esemplare)
Doc. 2) **PROV** n. tav. _____ disegno (obbligatorio se citato in descrizione, 1 esemplare)
Doc. 3) **XKS** lettera d'incarico, procura o riferimento procura generale
Doc. 4) **1** **RIS** designazione inventore
Doc. 5) **RIS** documenti di priorità con traduzione in italiano
Doc. 6) **RIS** autorizzazione o atto di cessione
Doc. 7) _____ nominativo completo del richiedente

SCIOGLIMENTO RISERVE

Data

N° Protocollo

confronta singole priorità

8) attestati di versamento, totale lire **CINQUECENTO SESSANTACINQUEMILA=** obbligatorio

COMPILATO IL **22** **01** **1999** FIRMA DEL (I) RICHIEDENTE (I) **p. ELF ATOCHEM S.A.**

CONTINUA SINO NO **SAMA PATENTS (DANIELE SAMA)**

DEL PRESENTE ATTO SI RICHIEDE COPIA AUTENTICA SINO **SI**

UFFICIO PROVINCIALE IND. COMM. ART. DI

MILANO

codice **15**

VERBALE DI DEPOSITO

NUMERO DI DOMANDA

MI99A 000121

Reg. A

L'anno millenovecento

NOVANTANOVE

il giorno

VENTIDUE

del mese di

GENNAIO

il (i) richiedente (i) sopraindicato (i) ha (hanno) presentato a me sottoscritto la presente domanda, corredate di n. **00** fogli aggiuntivi per la concessione del brevetto sopraportato.

I. ANNOTAZIONI VARIE DELL'UFFICIO ROGANTE

IL DEPOSITANTE
[Signature]

timbro
dell'ufficio

L'UFFICIALE ROGANTE
[Signature]
CORTONESI MAURIZIO

RIASSUNTO INVENZIONE CON DISEGNO PRINCIPALE

NUMERO DOMANDA

N. 99A 000 121

REG. A

DATA DI DEPOSITO

22 / 01 / 1999

AM 9995/001

NUMERO BREVETTO

DATA DI RILASCIO

/ /

A. RICHIEDENTE (I)

Denominazione

RLF ATOCHEM S.A.

Residenza

PUTEUX (FR)

D. TITOLO

"COMPOSITI DIFFONDENTI LA LUCE"

Classe proposta (sez./cl./scl/)

/ / /

(gruppo/sottogruppo)

/ / /

L. RIASSUNTO

Pannello composito di materiale termoplastico, comprendente uno strato base termoplastico trasparente, che conduce la luce, avente spessore generalmente compreso tra 3 e 40 mm, e uno strato che diffonde la luce, di spessore generalmente compreso tra 10 e 1500 micron, collocato su una faccia dello strato base, detto strato diffondente essendo caratterizzato dal fatto di contenere solfato di bario in quantità in peso, espressa come rapporto percentuale sul peso totale dello strato diffondente, compreso tra 0,01 e 2%, il solfato di bario avente dimensioni particellari medie comprese tra 0,1 e 50 micron, le dimensioni del composito essendo maggiori o uguali a 10 cm.

M. DISEGNO





Descrizione dell'invenzione industriale a nome:

ELF ATOCHEM S.A., di nazionalità francese, con sede in
4 & 8, Cours Michelet, La Défense 10, 92800 Puteaux (FR)

* * * * *

La presente invenzione riguarda un pannello composito costituito da almeno uno strato di polimero termoplastico, preferibilmente a base di polimeri acrilici, e da uno o due strati di una composizione a base di un materiale termoplastico, preferibilmente a base di polimeri acrilici, contenente particelle di uno specifico materiale in grado di diffondere la luce, detto pannello essendo utilizzabile per la preparazione di insegne luminose o displays anche di notevoli dimensioni, con lati almeno ≥ 10 cm, generalmente compresi tra 20 cm e 2 m, preferibilmente compresi tra 20 cm e 1 m, dette insegne essendo illuminate su uno o più bordi (edge lit), essendo l'area dell'insegna maggiore di 100 cm^2 , preferibilmente maggiore di 600 cm^2 .

Più in particolare l'invenzione si riferisce a lastre formate da una lastra base o strato base di copolimeri di metilmetacrilato con esteri (met)acrilici o acidi (met)acrilici, in particolare copolimeri metilmetacrilato/alchilacrilato, preferibilmente acrilato di etile, e da uno o due strati distinti costituiti da materiale termoplastico, preferibilmente uguale a quello della lastra base descritta, contenente particelle di uno specifico materiale in grado di diffondere la

luce, tali da fornire insegne luminose aventi una illuminazione il più possibile uniforme.

E' noto nell'arte che le insegne luminose tradizionali sono generalmente costituite da un telaio su cui vengono montate lastre o pannelli di materiale plastico che contiene particelle disperse in grado di diffondere la luce. In generale la sorgente luminosa non é posta sui bordi ma dietro il pannello (back lit). La caratteristica essenziale che viene richiesta alle insegne back lit é che le lastre siano sufficientemente opache in modo da mascherare la sorgente luminosa che si trova dietro la lastra. La fonte di luce é generalmente costituita da lampade al neon. Sulla faccia esterna della lastra si osserva l'illuminazione prodotta. Lo svantaggio di questo tipo di insegna sono i costi di fabbricazione elevati e la notevole quantità di energia elettrica richiesta per l'illuminazione.

Per ovviare a questi inconvenienti nell'arte nota sono state realizzate insegne illuminate con lampade collocate lateralmente rispetto all'insegna (ai bordi edge lit) utilizzando lastre in materiale termoplastico contenenti particelle diffondenti la luce dispersa nella massa. I raggi luminosi sono diffusi nella lastra dalle particelle diffondenti disperse nel polimero termoplastico. In generale anche quando si ottiene una intensità abbastanza uniforme della luce sulla superficie dell'insegna, questa non risulta molto elevata.

Dal punto di vista pratico risulta molto difficile ottenere una distribuzione il più possibile uniforme della luce, diffusa sulla superficie dell'insegna, combinata con una intensità elevata. Questo é il problema tecnico da risolvere: trovare composizioni che permettano di aumentare l'intensità della luce diffusa sulla superficie dell'insegna, e quindi cercare di ridurre le perdite di intensità luminosa diffusa lungo il materiale termoplastico. Questo problema diventa più difficile man mano che aumenta la dimensione dell'insegna luminosa. Detto problema non si pone quando le dimensioni del pannello sono molto piccole, minori di 10 cm, come per esempio i displays miniaturizzati. In questo caso é possibile ottenere sul pannello buoni risultati in termini di luce diffusa intensa ed uniforme. Tuttavia, come detto, questo risultato non dà nessun suggerimento per pannelli di dimensioni maggiori di quelle dei displays miniaturizzati, cioè maggiori o uguali di 10 cm.

Nel brevetto GB 2.165.631 é descritto un dispositivo di piccole dimensioni (miniaturizzato) per diffondere la luce, sostanzialmente costituito da un primo strato di base trasparente che trasmette la luce, che viene illuminato da una fonte luminosa collocata lateralmente rispetto allo strato (edge lit), da un secondo strato che diffonde la luce, contenente un agente convenzionale diffondente la luce, e da uno strato riflettente la luce, che si trova sulla superficie esterna dello

strato base. Negli esempi si indica che il pannello composito ha lati di dimensioni inferiori a 6,5 cm, essendo l'area del display miniaturizzato di 30 cm², e che lo strato riflettente consente di ottenere una luce diffusa sul display con intensità luminosa sufficientemente uniforme e si utilizza come agente diffondente della luce biossido di titanio. Nel brevetto viene anche indicato che i migliori risultati in termini di brillantezza del pannello si ottengono quando il secondo strato contiene quantità di biossido di titanio comprese tra 0,1 e 0,3% in peso. Prove effettuate dalla Richiedente hanno dimostrato che a queste concentrazioni di biossido di titanio non é possibile illuminare uniformemente pannelli compositi i cui lati siano maggiori di 10 cm, vale a dire aventi dimensioni superiori ai displays miniaturizzati (si vedano gli esempi).

Era sentita l'esigenza di disporre di lastre o pannelli per insegne o display luminosi, illuminati con una o più lampade collocate lateralmente rispetto all'insegna o display, che fossero in grado di presentare una illuminazione intensa e il più possibile omogenea.

E' stato ora sorprendentemente ed inaspettatamente trovato un pannello di materiale termoplastico che soddisfa ai requisiti sopra indicati, utilizzando un composito con uno specifico materiale diffondente la luce come qui di seguito descritto.

Costituisce un oggetto della presente invenzione un pan



nello composito di materiale termoplastico, comprendente uno strato base termoplastico trasparente che conduce la luce, avente spessore generalmente compreso tra 3 e 40 mm, preferibilmente da 6 a 25 mm e uno strato che diffonde la luce, di spessore generalmente compreso tra 10 e 1500 micron, preferibilmente da 30 a 1000 micron, collocato su una o entrambe le facce dello strato base, detto strato diffondente essendo caratterizzato dal fatto di essere costituito da materiale termoplastico contenente solfato di bario in quantità in peso, espressa come rapporto percentuale sul peso totale dello strato diffondente, compresa tra 0,01 e 2%, preferibilmente tra 0,1 e 0,8%, ancora più preferibilmente tra 0,1 e 0,6%, il solfato di bario avente dimensioni particellari medie comprese tra 0,1 e 50 micron, preferibilmente tra 0,5 e 10 micron, i lati del composito essendo almeno ≥ 10 cm, generalmente compresi tra 20 cm e 2 m, preferibilmente compresi tra 20 cm e 1 m, detto composito essendo illuminato su uno o più bordi (edge lit), essendo l'area del composito maggiore o uguale a 100 cm², preferibilmente maggiore di 600 cm².

Il materiale termoplastico polimerico di cui sono costituiti lo strato base e lo strato diffondente contenente solfato di bario può essere, ad esempio, un (co)polimero (met)acrilico, policarbonato, polistirene, politereftalato di etilene, copoliesteri costituiti da politereftalato di etilene modificato con un glicole come ad es. dietilenglicole, butandiolo,

esandiolo e 1,4-cicloesan dimetanolo o miscele di etilen poli-tereftalato e di questi copolimeri.

In particolare il (co)polimero o polimero termoplastico (met)acrilico può essere costituito da un omopolimero di (met)acrilato di alchile o da un copolimero derivato da un (met)acrilato di alchile con almeno un monomero avente una o più insaturazioni etileniche copolimerizzabile con il (met)acrilato di alchile.

Come (met)acrilato di alchile si possono menzionare i composti in cui il gruppo alchile ha da 1 a 8 atomi di carbonio, per esempio (met)acrilato di metile, etile, propile, isopropile e butile. Un monomero particolarmente preferito è il metacrilato di metile.

Preferibilmente il polimero termoplastico è costituito da omopolimeri di metacrilato di metile o copolimeri di metilmetacrilato con esteri (met)acrilici o acidi (met)acrilici, in particolare copolimeri metilmetacrilato/alchilacrilato, preferibilmente acrilato di etile.

Il (co)polimero termoplastico (met)acrilico comprende da 70 al 100% in peso di metacrilato di alchile e da 0 a 30% in peso, preferibilmente da 3 a 10% in peso, di uno o più comonomeri contenenti una o più insaturazioni etileniche, detti comonomeri copolimerizzabili con il metacrilato di alchile. Questi comonomeri contenenti una o più insaturazioni etileniche sono scelti, ad esempio, tra C_1 - C_8 alchil-acrilati, stirene,

stirene sostituito, acrilonitrile, metacrilonitrile, C_1-C_8 alchil metacrilati diversi dal metacrilato di alchile usato come comonomero principale, acrilati e metacrilati di idrossialchile, gli acrilati e metacrilati di alcossialchile o di arilossialchile in cui il gruppo alchilico possiede da 1 a 4 atomi di carbonio, acrilammide, metacrilammide, l'acido acrilico, l'acido metacrilico, le maleimmidi e i dimetacrilati di C_1-C_4 alchilen glicol.

I copolimeri acrilici dell'invenzione possono venire ottenuti con uno qualsiasi dei processi noti, per esempio per polimerizzazione in sospensione o in massa, secondo i metodi ben noti nell'arte. La polimerizzazione avviene in presenza di un trasferitore di catena, come ad es. terpeni monociclici di-insaturi e terpeni biciclici monoinsaturi come ad es. terpinolene; mercaptani, come tert-dodecil mercaptano.

Il pannello composito per insegna secondo la presente invenzione può venir prodotto per coestrusione, per colata, oppure per stampaggio a compressione o per accoppiamento di un film in calandratura o opzionalmente per incollaggio, secondo i metodi ben noti al tecnico del ramo. Preferibilmente il composito viene preparato per coestrusione della lastra di base di polimero termoplastico e dello strato diffondente di polimero termoplastico contenente il solfato di bario; oppure per stampaggio a compressione dello strato diffondente di polimero termoplastico contenente il solfato di bario, ottenuto per

estrusione, su una lastra di base del polimero termoplastico, detta lastra ottenuta per estrusione o colata. La coestrusione é il processo preferito per ottenere i pannelli costituiti dallo strato base e dallo strato diffondente secondo la presente invenzione.

I bordi del pannello composito sono preferibilmente lucidati secondo tecniche note.

Su uno o più bordi del pannello composito della presente invenzione, sui quali non é posizionata la sorgente luminosa, può essere collocato un film riflettente, quale ad es. film Scotch 3M° polyester tape 850, alluminio, ecc.

Opzionalmente il polimero termoplastico della lastra di base può contenere particelle di sostanze diffondenti la luce, sia di tipo polimerico che inorganico. Le dimensioni medie delle particelle polimeriche sono comprese tra 0,1 e 200 micron, preferibilmente da 0,1 a 50 micron, più preferibilmente da 1 a 15 micron, la quantità é compresa da 5 a 1000 ppm, preferibilmente da 100 a 200 ppm. Preferibilmente le particelle polimeriche sono di tipo sferico. Le particelle inorganiche hanno le dimensioni indicate sopra per lo strato superficiale diffondente e sono utilizzate nelle quantità indicate per le particelle polimeriche organiche.

Quando si utilizza la coestrusione la temperatura di fusione del polimero delle particelle polimeriche organiche diffondenti la luce deve essere superiore alla temperatura di



estrusione, in generale superiore a 250°C.

Opzionalmente sulla superficie libera della lastra di base del composito, non unita allo strato diffondente, possono essere presenti bande adesive parallele, di larghezza da qualche millimetro a qualche centimetro, ad es. da 0,5 a 20 mm, poste a una distanza l'una dall'altra generalmente compresa nei limiti indicati, detta distanza potendo essere anche superiore alla larghezza delle strisce, si veda ad es. il brevetto EP 242.308. In questo modo si aumenta ulteriormente l'intensità luminosa.

I seguenti esempi illustrano l'invenzione, e non limitano l'ambito di applicazione della stessa.

ESEMPIO 1

Descrizione del sistema di illuminazione

Sistema di illuminazione A (su un bordo, con lampada all'interno di una struttura metallica recante una fessura)

Il sistema di illuminazione consiste di una lampada al neon Osram L 30W/20 inserita all'interno di una struttura metallica chiusa tranne che su un lato, dove è presente un'apertura, centrata rispetto alla lampada, avente dimensioni di circa 8,5 mm di larghezza e della medesima lunghezza della lampada. L'illuminazione del pannello composito secondo l'invenzione viene effettuata lateralmente, inserendo per una profondità di circa 1 cm un bordo di detto pannello all'interno della fessura, in maniera tale che il bordo della lastra sia

praticamente a contatto della lampada. Sotto il pannello, a contatto dello stesso, viene collocata una lastra bianca opaca Altuglas 213 20493, 5 mm di spessore prodotta dalla società Atoglas.

Sistema di illuminazione B (su un bordo, con un foglio di alluminio avvolto attorno alla lampada e che ricopre parzialmente il pannello)

Il sistema di illuminazione consiste di una lampada Philips Reflex TL 5 - 13 W, a cui é appoggiato un bordo laterale del pannello composito. Un foglio di alluminio viene avvolto attorno alla lampada a coprire le due superfici del pannello fino a una distanza di circa 5 cm dal bordo a contatto con la lampada. Il foglio di alluminio ha lo scopo di impedire la dispersione della luce emessa dalla lampada.

A contatto con la superficie inferiore del pannello viene collocata una lastra bianca opaca Altuglas 213 20493, avente 5 mm di spessore, prodotta della società Atoglas.

Sistema di illuminazione C (su due bordi)

Il sistema é costituito da due sistemi di illuminazione, ciascuno identico al sistema A, collocati su due bordi opposti del pannello. Inoltre, a circa 3 cm sotto il pannello viene collocata una lastra bianca opaca Altuglas 213 20493 avente 5 mm di spessore, della società Atoglas.

Rilevatori di intensità di luce diffusa

Rilevatore 1 - luxmetro RS 180 - 7133 con opzione F

(fluorescente) per selezione sorgente luminosa. I valori riportati nelle tabelle seguenti sono quelli medi e si riferiscono a un tempo medio di rilevazione di ogni misura di circa 10 sec.

Rilevatore 2 - luxmetro LAP N° 3091 F cellula fotoelettrica 67.

ESEMPIO 2

Pannello (composito) formato da due strati, ottenuto per stampaggio a compressione

Lo strato base del pannello è costituito da PMMA trasparente avente uno spessore di circa 8 mm e dimensioni 270 x 270 mm, ricavato da una lastra Altuglas® 200 10000 avente 8 mm di spessore nominale, prodotta dalla Società Atoglas.

Lo strato diffondente è costituito da PMMA e particelle di solfato di bario: una foglia di $450 \pm 50 \mu\text{m}$ di spessore è ottenuta estrudendo su un estrusore monovite convenzionale provvisto di degasaggio, con profilo termico standard per il PMMA, una mescola composta per il 99,5 % di perle Altuglas® BS 9EL, prodotte dalla società Atoglas e per il 0,5 % di polvere Blanc Fixe® K3 prodotta dalla società Sachtleben Chemie, contenente il 99% di solfato di bario BaSO_4 , avente dimensionale media delle particelle di $8 \mu\text{m}$.

Per realizzare il pannello doppio strato la lastra e la foglia sopra descritte vengono accoppiate tramite stampaggio a compressione utilizzando una pressa a compressione Potvel da 60

tonnellate; la temperatura di accoppiamento è di circa 150°C, con un ciclo totale massimo di plastificazione e compressione di 30 minuti circa. Il ciclo di raffreddamento è di circa 5-10 minuti. La temperatura di estrazione della lastra è di circa 70°C. Usando questo metodo di preparazione nel pannello che viene ottenuto lo spessore dello strato diffondente può non risultare perfettamente uniforme.

Il pannello ha un valore di Trasmittanza di 89% e un Haze di 40%, misurati con Hazemeter secondo la normativa ASTM D 1003.

ESEMPIO 2a

Misure di diffusioni luminose effettuate utilizzando una sorgente luminosa secondo il sistema A dell'esempio 1

Vengono effettuate in camera oscura misurazioni di luce diffusa con il rilevatore 1, spostando la cella fotoelettrica del rilevatore, tenuta a contatto con la superficie libera dello strato superiore contenente solfato di bario, in determinate posizioni, a distanze diverse dalla sorgente luminosa. La lastra bianca opaca è collocata a contatto con lo strato inferiore del pannello. In testa alle colonne di Tabella 1 sono riportate le distanze, misurate con riferimento alla superficie esterna della struttura metallica contenente la lampada, a cui sono stati determinati i valori dell'intensità luminosa diffusa. Nella prima colonna a sinistra è quindi riportato il valore assoluto in Lux, determinato alla distanza di 3 cm dalla strut-



tura metallica esterna della lampada (4 cm dalla superficie della lampada). Nelle altre colonne i valori dell'intensità della luce diffusa sono espressi come percentuale rispetto al precedente valore assoluto.

Tabella 1

| 3 (cm) | 7 | 9 | 12,5 | 15 | 17 | 19 | 22 |
|--------------|------|------|------|------|------|------|------|
| 490 (Lux) | | | | | | | |
| 100 % | 86 % | 80 % | 68 % | 67 % | 63 % | 60 % | 53 % |

ESEMPIO 2b

Misure di diffusione luminosa con due sorgenti luminose collocate su due lati opposti del pannello secondo il sistema C dell'Esempio 1

Vengono effettuate in camera oscura misurazioni di luce diffusa utilizzando il rilevatore 1, spostando la cella fotoelettrica del rilevatore, tenuta a contatto con la superficie libera dello strato superiore contenente solfato di bario, nelle stesse posizioni rispetto alla sorgente luminosa come indicato nel precedente esempio 2a. La lastra bianca opaca è posizionata a 3 cm dallo strato inferiore del pannello. La Tabella 2 riporta, come la precedente Tabella 1:

- Il valore assoluto dell'intensità luminosa diffusa, espressa in Lux, misurata a 3 cm rispetto alla superficie esterna di una delle due strutture metalliche contenenti le lampade, come indicato nell'Es. 2a.
- Il valore dell'intensità luminosa diffusa, misurato a distanze diverse, espresso come percentuale rispetto al va-

lore assoluto precedente di intensità di luce diffusa.

Tabella 2

| | | | | | | | |
|--------------|-------|---|-------|-------|----|-------|--------------|
| 3 (cm) | 7 | 9 | 12,5 | 15 | 17 | 19 | 22 |
| 500 (Lux) | | | | | | | 500 (Lux) |
| 100 % | 114 % | - | 115 % | 114 % | - | 113 % | 100 % |

ESEMPIO 2c

L'Esempio 2b é stato ripetuto nelle medesime condizioni sopra indicate, ma utilizzando il rilevatore 2 dell'Esempio 1. In Tabella 3 seguente mostra i risultati ottenuti. L'andamento dell'intensità luminosa diffusa percentuale é simile a quello di Tabella 2.

Tabella 3

| | | | | | | | |
|--------------|-------|-------|-------|-------|-------|----|--------------|
| 3 (cm) | 7 | 9 | 12,5 | 15 | 17 | 19 | 22 |
| 420 (Lux) | | | | | | | 420 (Lux) |
| 100 % | 113 % | 113 % | 114 % | 115 % | 115 % | - | 100 % |

ESEMPIO 2d

Le determinazioni sono state effettuate come nell'Es. 2b, ma usando il pannello in posizione capovolta, in modo che lo strato diffondente contenente il solfato di bario fosse situato inferiormente, nella posizione più bassa, rispetto allo strato base e collocando la cella del rilevatore a contatto con lo strato di PMMA tal quale (lastra base): i risultati sono riportati in Tabella 4 e dimostrano che l'effetto diffondente è analogo.

Tabella 4

| | | | | | | | |
|--------------|-------|-------|-------|-------|-------|-------|--------------|
| 3 (cm) | 7 | 9 | 12,5 | 15 | 17 | 19 | 22 |
| 488 (Lux) | | | | | | | 490 (Lux) |
| 100 % | 111 % | 110 % | 110 % | 110 % | 111 % | 112 % | 100 % |

ESEMPIO 3Pannello a tre strati ottenuto tramite stampaggio a compressione

Nel pannello a tre strati lo strato intermedio è lo strato base trasparente, costituito da PMMA tal quale, avente spessore di 8 mm circa, ricavato da una lastra Altuglas® 200 10000, 8 mm di spessore nominale, prodotto dalla Società Atoglas, di dimensioni 270 x 270 mm.

I due strati esterni sono costituiti da PMMA e solfato di bario: due foglie di $200 \pm 10 \mu\text{m}$ di spessore vengono ottenute estrudendo su un estrusore monovite convenzionale, provvisto di degasaggio, con profilo termico standard per il PMMA, una miscela contenente 99,4% di perle Altuglas® BS 9EL prodotto dalla società Atoglas e 0,6% di polvere Blanc Fixe® K3 prodotta dalla società Sachtleben Chemie, contenente 99% di solfato di bario con dimensionale media delle particelle 8 μm .

Le due foglie a basso spessore vengono accoppiate alle due superfici della lastra di 8 mm tramite stampaggio a compressione, utilizzando una pressa a compressione Potvel da 60 tonnellate: la temperatura di accoppiamento è di circa 155°C, con un ciclo totale massimo di plastificazione e compressione di 30 minuti circa. Il ciclo di raffreddamento è di circa 5-10 minu-

ti. La temperatura di estrazione della lastra è di circa 70°C.

Il pannello ottenuto ha un valore di Trasmittanza di 89% e un Haze di 40%, misurati con Hazemeter secondo la normativa ASTM D 1003.

Esempio 3a

Misure di diffusione luminose effettuate utilizzando una sorgente luminosa secondo il sistema A dell'Esempio 1

Vengono effettuate misurazioni di luce diffusa in camera oscura secondo le modalità descritte nell'Es. 2a, utilizzando il rilevatore 1. In Tabella 5 é riportato il valore assoluto dell'intensità luminosa diffusa, espresso in Lux, misurato a 3 cm dal bordo della struttura metallica nella quale é contenuta la lampada e il valore dell'intensità luminosa diffusa, misurato a distanze diverse rispetto alla sorgente luminosa come indicato nell'Es. 2a, espresso come percentuale rispetto al valore assoluto precedente di intensità di luce diffusa.

Tabella 5

| 3 (cm) | 7 | 9 | 12,5 | 15 | 17 | 19 | 22 |
|--------------|------|------|------|------|------|------|------|
| 530 (Lux) | | | | | | | |
| 100 % | 84 % | 75 % | 63 % | 60 % | 58 % | 55 % | 50 % |

Esempio 3b

Misure di diffusione luminosa con due sorgenti luminose collocate su due lati opposti del pannello secondo il sistema C dell'Esempio 1

Vengono effettuate in camera oscura misurazioni di luce diffusa utilizzando il rilevatore 1, spostando la cella fo-



toelettrica del rilevatore, tenuta a contatto con la superficie libera dello strato superiore contenente solfato di bario, nelle medesime posizioni rispetto alla sorgente luminosa come indicato nel'Es. 2a. La lastra bianca opaca è collocata a 3 cm dallo strato inferiore del pannello. I risultati sono riportati in Tabella 6.

Tabella 6

| 3 (cm) | 7 | 9 | 12,5 | 15 | 17 | 19 | 22 |
|--------------|-------|-------|-------|-------|-------|-------|--------------|
| 520 (Lux) | | | | | | | 520 (Lux) |
| 100 % | 105 % | 103 % | 100 % | 102 % | 102 % | 102 % | 100 % |

ESEMPIO 4

Pannello coestruso a due strati

Lo strato inferiore del pannello (strato base) è costituito da PMMA trasparente, avente spessore di circa 3,7 mm, ottenuto estrudendo granuli Oroglass® V045 prodotti dalla Società Atoglas.

Lo strato diffondente, avente spessore di circa 100 µm, costituito da PMMA e solfato di bario, viene ottenuto estrudendo granuli di PMMA Oroglass® V045 additivati con master batch contenente polvere Blanc Fixe® K3 prodotta dalla società Sachtleben Chemie, detta polvere costituita per il 99% da solfato di bario di dimensione media delle particelle di 8 µm circa, tale che il contenuto di solfato di bario nello strato diffondente risulti lo 0.6% in peso.

Il coestrusore con calandra è costituito da due estrusori monovite provvisti di degasaggio: i materiali sono estrusi

utilizzando un profilo termico convenzionale per il PMMA. La lastra ottenuta ha un larghezza di 30 cm.

Il pannello ottenuto ha un valore di Trasmittanza di 91% e un Haze di 15% misurati con Hazemeter secondo la normativa ASTM D 1003.

ESEMPIO 4a

Misure di diffusione luminosa effettuate utilizzando una sorgente luminosa secondo il sistema B dell'Esempio 1

Vengono effettuate in camera oscura misurazioni di luce diffusa con il rilevatore 1, spostando la cella fotoelettrica del rilevatore, tenuta a contatto con la superficie libera dello strato superiore contenente solfato di bario, in determinate posizioni, a distanze diverse, calcolate facendo riferimento alla superficie esterna della lampada, indicate nella seguente Tabella 7. La lastra bianca opaca è collocata a contatto con lo strato inferiore del pannello. I risultati sono riportati in tabella 7.

Tabella 7

| 10 (cm) | 15 | 20 |
|-----------|------|------|
| 660 (Lux) | 77 % | 55 % |

ESEMPIO 5 (confronto)

Pannello contenente nello strato diffondente biossido di titanio al posto di solfato di bario

Si utilizza un pannello a due strati identico, con le medesime dimensioni e spessore dello strato base e strato diffon-

dente, come quello descritto nell'esempio 2, ottenuto con la medesima tecnica di stampaggio a compressione. L'ossido contenuto nello strato diffondente, ottenuto con la stessa tecnica di estrusione della foglia contenente il solfato di bario, é biossido di titanio (Kronos® 2210 della Kronos Titan a titolo circa del 94%) in percentuale in peso sul peso totale dello strato dello 0,3%.

Il pannello a due strati ottenuto ha un valore di Trasmissione di 33% e un Haze di 100%, misurati con Hazemeter secondo la normativa ASTM D 1003.

ESEMPIO 5a (confronto)

Misure di diffusione luminose effettuate utilizzando una sorgente luminosa secondo il sistema A dell'Esempio 1

Sulla lastra così preparata vengono effettuate in camera oscura misurazioni di luce diffusa con il rilevatore 1, spostando la cella fotoelettrica del rilevatore, tenuta a contatto con la superficie libera dello strato superiore contenente biossido di titanio, nelle medesime posizioni rispetto alla sorgente luminosa come indicato nell'Es. 2a. La lastra bianca opaca è collocata a contatto dello strato inferiore del pannello. I risultati sono riportati in Tabella 8. In testa alle colonne sono riportate le distanze, misurate dalla superficie esterna della struttura metallica contenente la lampada, a cui sono stati determinati i valori dell'intensità luminosa diffusa. Nella prima colonna a sinistra é riportato il valore asso-

luto in Lux, determinato alla distanza di 3 cm (4 cm circa dalla superficie della lampada). Nelle altre colonne i valori dell'intensità della luce diffusa sono espressi come percentuale rispetto al valore assoluto precedente di intensità di luce diffusa.

Tabella 8

| 3 (cm) | 7 | 9 | 12,5 | 15 | 17 | 19 | 22 |
|--------------|------|------|------|------|------|------|------|
| 920 (Lux) | | | | | | | |
| 100 % | 52 % | 39 % | 25 % | 18 % | 14 % | 12 % | 10 % |

ESEMPIO 5b (confronto)

Misure di diffusione luminose con due sorgenti luminose collocate su due lati opposti del pannello secondo il sistema C dell'Esempio 1

Sul pannello preparato nel precedente Esempio 5 vengono effettuate in camera oscura misurazioni di luce diffusa utilizzando il rilevatore 1, spostando la cella fotoelettrica del rilevatore, tenuta a contatto con la superficie libera dello strato superiore contenente biossido di titanio, nelle medesime posizioni indicate nel precedente Es. 2a. La lastra bianca opaca è collocata a 3 cm dallo strato inferiore del pannello. I risultati sono riportati in Tabella 9.

Tabella 9

| 3 (cm) | 7 | 9 | 12,5 | 15 | 17 | 19 | 22 |
|--------------|------|------|------|------|------|------|--------------|
| 920 (Lux) | | | | | | | 920 (Lux) |
| 100 % | 79 % | 73 % | 62 % | 69 % | 75 % | 82 % | 100 % |



RIVENDICAZIONI

1. Pannello composito di materiale termoplastico, comprendente uno strato base termoplastico trasparente, che conduce la luce, avente spessore generalmente compreso tra 3 e 40 mm, preferibilmente da 6 a 25 mm, e uno strato che diffonde la luce, di spessore generalmente compreso tra 10 e 1500 micron, preferibilmente da 30 a 1000 micron, collocato su una o entrambe le facce dello strato base, detto strato diffondente essendo caratterizzato dal fatto di essere costituito da materiale termoplastico contenente solfato di bario in quantità in peso, espressa come rapporto percentuale sul peso totale dello strato diffondente, compreso tra 0,01 e 2%, preferibilmente tra 0,1 e 0,8%, ancora più preferibilmente tra 0,1 e 0,6%, il solfato di bario avente dimensioni particellari medie comprese tra 0,1 e 50 micron, preferibilmente tra 0,5 e 10 micron, i lati del composito essendo almeno ≥ 10 cm, preferibilmente compresi tra 20 cm ed 1 m, detto composito essendo illuminato su uno o più bordi (edge lit), essendo l'area del composito maggiore di 100 cm², preferibilmente maggiore di 600 cm².
2. Pannello secondo la rivendicazione 1, in cui il pannello composito contiene un solo strato diffondente.
3. Pannello secondo le rivendicazioni 1-2, in cui la sorgente luminosa é collocata su due bordi opposti.

4. Pannello secondo le rivendicazioni 1-3, in cui il materiale termoplastico di cui sono costituiti lo strato base e lo strato diffondente contenente il solfato di bario é scelto tra un (co)polimero (met)acrilico, policarbonato, polistirene, politereftalato di etilene, copoliesteri costituiti da politereftalato di etilene modificato con un glicole come ad es. dietilenglicole, butandiolo, esandiolo e 1,4-cicloesano dimetanolo o miscele di etilene politereftalato con questi copolimeri.
5. Pannello secondo la rivendicazione 4 in cui il (co)polimero termoplastico (met)acrilico é costituito da un omopolimero di (met)acrilato di alchile o da un copolimero derivato da un (met)acrilato di alchile con almeno un monomero avente una o più insaturazioni etileniche copolimerizzabile con il (met)acrilato di alchile.
6. Pannello secondo la rivendicazione 5 in cui il (met)acrilato di alchile é scelto tra i composti in cui il gruppo alchile ha da 1 a 8 atomi di carbonio quali (met)acrilato di metile, etile, propile, isopropile e butile.
7. Pannello secondo le rivendicazioni 4-6 in cui il polimero termoplastico é costituito da omopolimeri di metacrilato di metile o copolimeri di metilmetacrilato con esteri (met)acrilici o acidi (met)acrilici.
8. Pannello secondo la rivendicazione 7 in cui il polimero

termoplastico é costituito da copolimeri metilmetacrilato/alchilacrilato, preferibilmente acrilato di etile.

9. Pannello secondo la rivendicazione 5 in cui il (co)polimero termoplastico (met)acrilico comprende dal 70 al 100% in peso di metacrilato di alchile e da 0 a 30% in peso, preferibilmente da 3 a 10% in peso, di uno o più comonomeri contenenti una o più insaturazioni etileniche, detti comonomeri essendo copolimerizzabili con il metacrilato di alchile.
10. Pannello secondo le rivendicazioni 1-9 in cui il pannello composito é ottenuto per coestrusione, per colata, oppure per stampaggio a compressione o per accoppiamento di un film in calandratura, o opzionalmente per incolaggio.
11. Pannello secondo la rivendicazione 10 in cui il composito é preparato per coestrusione della lastra di base di polimero termoplastico e dello strato diffondente di polimero termoplastico contenente il solfato di bario, o per stampaggio a compressione dello strato di polimero termoplastico contenente solfato di bario, ottenuto per estrusione, su una lastra di base di polimero termoplastico, detta lastra ottenuta per estrusione o colata.
12. Pannello secondo le rivendicazioni 1-11 in cui su uno o più bordi del pannello composito, sui quali non é posizionata la sorgente luminosa, é collocato un film ri-

flettente.

13. Pannello secondo le rivendicazioni 1-12 in cui il polimero termoplastico della lastra di base può contenere particelle di sostanze diffondenti la luce, sia di tipo polimerico che inorganico.
14. Pannello secondo la rivendicazione 13 in cui le dimensioni medie delle particelle polimeriche sono comprese tra 0,1 e 200 micron, preferibilmente da 0,1 a 50 micron, più preferibilmente da 1 a 15 micron, la quantità è compresa da 5 a 1000 ppm, preferibilmente da 100 a 200 ppm.
15. Pannello secondo le rivendicazioni 1-14 in cui sulla superficie libera della lastra di base del composito sono presenti bande adesive parallele, di larghezza da qualche millimetro a qualche centimetro, preferibilmente da 0,5 a 20 mm, poste a una distanza l'una dall'altra generalmente compresa nei limiti indicati, detta distanza essendo anche superiore alla larghezza delle strisce.
16. Insegne luminose comprendenti il pannello composito delle rivendicazioni da 1-15.

Milano, 22 GEN. 1999

p. ELF ATOCHEM S.A.

SAMA PATENTS

(Daniele Sama)

